



PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

#4  
8/5/02  
Mallish

In re application of

Takeshi SHIBATA, et al.

Appln. No.: 10/084,933

Group Art Unit: 2811

Confirmation No.: 7130

Examiner: Not Yet Assigned

Filed: March 01, 2002

For: METHOD FOR PRODUCING ORGANIC THIN FILM DEVICE AND TRANSFER  
MATERIAL USED THEREIN

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENTS

Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Sir:

Submitted herewith are certified copies of the priority documents on which claims to  
priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to  
acknowledge receipt of said priority documents.

Respectfully submitted,

Peter D. Olexy  
Registration No. 24,513

SUGHRUE MION, PLLC  
2100 Pennsylvania Avenue, N.W.  
Washington, D.C. 20037-3213  
Telephone: (202) 293-7060  
Facsimile: (202) 293-7860  
PDO/rwl  
Enclosures: Japan 2001-058834  
Japan 2001-058835

Date: May 28, 2002



SHIBATA, et al. Q68771  
METHOD FOR PRODUCING ORGANIC THIN FILM  
AND TRANSFER MATERIAL USED THEREIN  
10/084,933  
Peter D. Olexy 202-293-7060  
1 of 2

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office

出願年月日

Date of Application:

2001年 3月 2日

出願番号

Application Number:

特願2001-058834

出願人

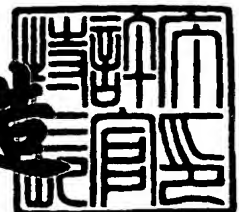
Applicant(s):

富士写真フイルム株式会社

2001年 8月31日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3081070

【書類名】 特許願

【整理番号】 FJ-0092

【提出日】 平成13年 3月 2日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/14

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

    【氏名】 柴田 剛

【特許出願人】

    【識別番号】 000005201

    【住所又は居所】 神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地

    【氏名又は名称】 富士写真フイルム株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100080012

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 高石 橘馬

    【電話番号】 03(5228)6355

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 009324

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

    【包括委任状番号】 9907443

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 転写材料及び有機薄膜素子の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 仮支持体上に、湿式法により、青、緑及び赤の 3 色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を設けたことを特徴とする転写材料。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の転写材料を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料を前記被成膜面に貼り合わせて密着させ、加熱した後前記仮支持体を引き剥がし、青、緑及び赤の 3 色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を前記基板に転写することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【請求項 3】 請求項 1 に記載の転写材料を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれた空間を減圧することにより両者を密着させ、加熱した後前記仮支持体を引き剥がし、青、緑及び赤の 3 色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を前記基板に転写することを特徴とする有機薄膜素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機EL素子等の有機薄膜素子の有機薄膜層をパターンニングするための転写材料、及びかかる転写材料を使用する有機薄膜素子の製造方法に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】

有機EL素子等の有機発光素子は容易に面状発光素子に適用し得るため、新たな光デバイスとして注目されている。具体的には、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子や書きこみ光源アレイとしての用途が有望視され、多くの開発が行なわれている。一般に有機発光素子は、発光層及び前記発光層を挟んだ一対の対向電極（背面電極及び透明電極）から構成されている。前記有機発光素子において、一対の対向電極間に電界が印加されると、有機発光素子内に背面電極から電子が注入されるとともに、透明電極から正孔が注入される。電子と正孔とが前記発光層中で再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギー

ーが光として放出され、発光する。

【 0 0 0 3 】

有機EL素子の有機薄膜形成の多くは蒸着方式により製造されている。カラー画像を得るためのパターニング方式も提案されている。たとえば、米国特許第5294869号に示されるシャドウマスクを用いた方法がある。ところが、この方法は複雑な蒸着装置を必要とするため製造効率が悪く、またパターニングの位置精度も悪い。

【 0 0 0 4 】

この点を解決する手段として、特開平9-167684号は、マイカ仮基板上に予め有機層を均一に蒸着プロセスで形成し、次いで基板と有機層を近接させ、パターン上に選択的に加熱蒸着する方式を提案している。また特開2000-195665号は、フィルム仮基板に予め有機層を均一に蒸着プロセスで形成し、次いでマスクを介して基板と有機層を近接させ、マスクのパターン状に蒸着パターンを形成する方式を提案している。これらの方式は、蒸着源を仮基板に形成すること以外は、蒸着プロセスを用いる必要があるため、製造効率が悪く、また有機薄膜用に低分子有機化合物しか使用できない。

【 0 0 0 5 】

また緑色の発光を示すポリパラフェニレンビニレン（「ネイチャー」、347巻、539頁、1990年）、赤橙色の発光を示すポリ（3-アルキルチオフェン）（ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジクス、30巻、L1938頁、1991年）、青色発光素子としてポリアルキルフルオレン（ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジクス、30巻、L1941頁、1991年）等の高分子の発光薄膜や低分子化合物をバインダー樹脂に分散させた発光薄膜を用いた高分子型素子も知られている。これらの高分子型素子は大面積化に有利であり、またフレキシブルなディスプレイ用途として期待されているが、有機発光薄膜の形成に蒸着プロセスを適応できない。そのため、通常湿式法により薄膜形成が行われている。

【 0 0 0 6 】

高分子型素子の薄膜パターニング形成方法として、インクジェット法や印刷法

等が提案されている。ところが、これらの方式では、湿式法のため溶液の表面張力により有機薄膜の膜厚均一性が不十分であり、また有機薄膜層を積層する場合に各有機薄膜層の界面で溶解してしまうという問題がある。このため、この方法により得られた有機薄膜素子は発光効率や素子耐久性に劣るという問題があった。

## 【 0 0 0 7 】

また有機発光素子の基板材料として、高分子型素子と組み合わせたフレキシブルなディスプレイ用途が期待されている。しかし酸素や水分に極めて弱いため、プラスチックフィルム製は今のところ実用化に不向きであり、ガラス製が主流である。ところがプラスチックフィルムに比べてガラスのハンドリングは困難であるため、湿式塗布の生産性が悪いという問題点がある。

## 【 0 0 0 8 】

その上、プラスチックフィルム製基板を用いる場合、透明電極や薄膜トランジスタも基板上に積層するので、単価が高いという問題もある。このような基板上に有機薄膜層を塗布することは、歩留まりや経済性の観点から不利である。このため、基板上への安価な高分子型素子の薄膜パターンニング方式が望まれている。

## 【 0 0 0 9 】

WO 00/41893号は、有機薄膜と光熱変換層を有するドナーシートを用いて、レーザーにより所望のパターンに熱転写する方式を提案している。ところがWO 00/41893号のような熱転写法の場合、有機薄膜層の接合界面に気体の巻き込みの問題がある。有機薄膜層の界面の状態により、有機EL素子の発光効率や耐久性、更に発光面状の均一性が異なり、有機薄膜層の接合界面に気体の巻き込みがあると、素子性能は悪化する。

## 【 0 0 1 0 】

またプリント技術分野で利用されている熱ヘッドやレーザーを用いたパターン状の熱書き込みの場合、熱拡散性によりパターン周辺の温度分布が生じて、有機薄膜パターンの輪郭がきれいにドナー側から切断されない。このため発光量のばらつきが生じたり、また電氣的不良や薄膜破片による欠陥が起こり、更に耐久性

も悪くなるという問題がある。また基板と熱ヘッドやレーザとの位置合わせの不良により、歩留まり低下の問題もある。

【 0 0 1 1 】

従って本発明の目的は、生産性の高い湿式有機薄膜形成法による高分子型有機EL素子の転写材料、及びそれを用いた有機薄膜素子の製造方法を提供することである。

【 0 0 1 2 】

【課題を解決するための手段】

上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者は、青、緑及び赤の3原色の発光画素をパターンニングした有機薄膜層を仮支持体に湿式法により塗布し、その有機薄膜層を基板の被成膜面に転写することにより、効率良く有機薄膜素子を低コストで製造できることを発見し、本発明に想到した。

【 0 0 1 3 】

すなわち、本発明の有機薄膜素子形成用の転写材料は、仮支持体上に、湿式法により、青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を設けたことを特徴とする。

【 0 0 1 4 】

また本発明の一実施例による有機薄膜素子の製造方法は、仮支持体上に湿式法により青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を設けてなる転写材料を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料を前記被成膜面に貼り合わせて密着させ、加熱した後前記仮支持体を引き剥がし、青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を前記基板に転写することを特徴とする。

【 0 0 1 5 】

本発明の他の実施例による有機薄膜素子の製造方法は、仮支持体上に湿式法により青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を設けてなる転写材料を基板の被成膜面に対面させ、前記転写材料と前記被成膜面とに挟まれた空間を減圧することにより両者を密着させ、加熱した後前記仮支持体を引き剥がし、青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を前記

基板に転写することを特徴とする。

【 0 0 1 6 】

【発明の実施の形態】

[1] 転写材料

(1) 仮支持体

本発明に使用する仮支持体は、化学的及び熱的に安定であって、可撓性を有する材料により構成されるべきであり、具体的にはフッ素樹脂〔例えば4フッ化エチレン樹脂 (PTFE)、3フッ化塩化エチレン樹脂 (PCTFE)〕、ポリエステル〔例えばポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート (PEN)〕、ポリアリレート、ポリカーボネート、ポリオレフィン（例えばポリエチレン、ポリプロピレン）、ポリエーテルスルホン (PES) 等の薄いシート、又はこれらの積層体が好ましい。仮支持体の厚さは  $1\ \mu\text{m}$  ～  $300\ \mu\text{m}$  が適当であり、特に微細パターン状の有機薄膜層を形成する場合、 $3\ \mu\text{m}$  ～  $20\ \mu\text{m}$  であるのが好ましい。

【 0 0 1 7 】

(2) 仮支持体への有機薄膜層の形成

バインダーとして高分子化合物を含む有機薄膜層は、湿式法により仮支持体に形成するのが好ましい。これには、有機薄膜層用材料を有機溶剤に所望の濃度に溶解し、得られた溶液を仮支持体に塗布する。塗布法としては、有機薄膜層の乾燥膜厚が  $200\ \text{nm}$  以下で均一な膜厚分布が得られれば特に制限はなく、スピンコート法、スクリーン印刷法、グラビアコート法（例えばマイクログラビアコート法）、ディップコート法、キャスト法、ダイコート法、ロールコート法、バーコート法、エクストロージェンコート法、インクジェット塗布法等が挙げられる。中でも、パターンニングに好ましいマイクログラビアコート法及びインクジェット法が好ましい。

【 0 0 1 8 】

また各色の発光性化合物を含有する塗布液をマスクを介して順次所定のパターンに塗布することにより、青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を形成することもできる。マスクの材質は限定的でないが、金属、ガラス、セラミック、耐熱性樹脂等の耐久性があつて安価なものが好ましい。また



これらの材料を組み合わせ使用することもできる。また機械的強度及び有機薄膜層の発光画素のパターン精度の観点から、マスクの厚さは $2 \sim 100 \mu\text{m}$ であるのが好ましく、 $5 \sim 60 \mu\text{m}$ がより好ましい。

#### 【 0 0 1 9 】

### [2] 有機薄膜素子の製造方法

#### (1) 第一の態様

図 1 及び図 2 は本発明の第一の態様による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。この装置は、基板支持体101と、その上に設けられた透明導電層102と、透明導電層102を包囲するように基板支持体101上に設けられたマスク枠103とを有する。マスク枠103には透明導電層102と転写材料110との間の空間105に連通する減圧孔104が設けられており、減圧孔104はパイプ115により真空装置（図示せず）に接続している。

#### 【 0 0 2 0 】

転写材料110は仮支持体111の片面に、青、緑及び赤の 3 色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層112を有する。ロール113に巻かれた転写材料110を巻き戻し、マスク枠103の上をそれに接するようにして移動させる。これにより、転写材料110とマスク枠103及び透明導電層102を有する基板支持体101とに挟まれた閉空間105ができる（図 1）。転写材料110がマスク枠103に接した状態で真空装置を作動させると、閉空間105は減圧状態になるため、転写材料110は透明導電層102に密着し、図 2 に示す状態になる。この状態で、熱ヘッド等により転写材料110の有機薄膜層112を加熱すると、有機薄膜層112は透明導電層102に接着するので、仮支持体111を引き剥がし、さらにマスク枠103を取り外すと、透明導電層102上に有機薄膜層112が形成された有機薄膜素子が得られる（図 4）。

#### 【 0 0 2 1 】

#### (2) 第二の態様

図 3 は本発明の第二の態様による有機薄膜素子の製造方法を実施するための装置を示す。転写材料110の巻回用ロール116を移動させる機構を有し、かつマスク枠103上をそれと接するようにして、ロール116と同期して移動し得る遮蔽板120を有する。基板支持体101上の透明導電層102及びマスク枠103と、遮蔽板120と、

転写材料110とにより包囲された空間は、マスク枠103に設けられた減圧孔104に連通している。そのため第一の態様と同様に前記空間を減圧することにより、転写材料110の有機薄膜層112は透明導電層102に密着し、後は上記と同じ方法で加熱し、仮支持体111を剥離することにより、透明導電層102上に有機薄膜層112が連続面状に形成された積層体を得られる。

#### 【0022】

この方法では、転写材料110が小面積で透明導電層102と接触するので、転写材料110の有機薄膜層112と透明導電層102との間に空気が残留する恐れは非常に小さくなる。

#### 【0023】

##### (3) 剥離転写法

本発明は有機薄膜層の形成に剥離転写法を使用する。剥離転写法は、加熱により有機薄膜層を軟化させて、下地の透明導電層又は他の有機薄膜層に接着させた後、仮支持体を剥離することにより有機薄膜層だけを残留させる、すなわち転写する方法である。加熱手段としては、ラミネータ、赤外線ヒータ、レーザ、熱ヘッド等を利用することができる。熱ヘッドとしては、例えばファーストラミネータVA-400III（大成ラミネータ（株）製）や熱転写プリント用の熱ヘッド等を用いることができる。転写用の温度は特に限定的でなく、有機薄膜層の材質において変更することができるが、一般に40～200℃が好ましく、特に60～150℃が好ましい。

#### 【0024】

##### (4) 基板

図1に示すように、基板は基板支持体101とその上に形成された透明導電層102とからなる。基板支持体101及び透明導電層102の詳細は後述する。

#### 【0025】

##### [3] 有機薄膜層の例

##### (1) 単層の例

図4は本発明の方法により得られる有機薄膜素子の有機薄膜層の一例を示す。この有機薄膜層112は、青色の発光性有機化合物部分（青色の発光画素）121、緑

色の発光性有機化合物部分（緑色の発光画素）122、及び赤色の発光性有機化合物部分（赤色の発光画素）123からなる発光画素単位領域112aが、透明導電層102の全面に均一に形成されている。図4(b)に示すように、各発光画素121～123は帯状でも良いが、二次元的に格子状にすることもできる。

#### 【0026】

##### (2) 積層型有機薄膜層の層構成の例

本発明のパターニング済み転写材料から剥離転写した有機薄膜層に組み合わせて、基板上に他の有機薄膜層を積層することができる。他の有機薄膜層を積層する方法には制限はなく、基板上に湿式法により有機薄膜を塗布する方法を組み合わせ用いることもできるし、仮支持体に均一面状の有機薄膜層を形成した後、基板への剥離転写を行うことにより積層することもできる。あるいはパターニングされた有機薄膜層の上に別の有機薄膜層を湿式法により積層した転写材料を用いて、基板上に多層の有機薄膜層を形成し、次いで仮支持体を剥離することにより多層の有機薄膜層の転写を行うこともできる。またこれらの剥離転写を繰り返すことにより積層化しても良い。その積層方法に制限はないが、隣接する2層の溶剤溶解性が類似している場合、剥離転写を繰り返して積層するのが好ましい。図5(a)～(d)は、このような多層の有機薄膜層の構成例を示すが、これらに限定されるものではない。

#### 【0027】

##### (a) 第一の例

図5(a)は本発明の方法により得られる有機薄膜層の別の例を示す。この有機薄膜層310は、基板支持体301上の透明導電層302の上面に、ホール輸送性有機薄膜層311、発光性有機薄膜層312及び電子輸送性有機薄膜層313が形成されたものである。この発光性有機薄膜層312は、青、緑及び赤の発光画素312a、312b、312cからなる。

#### 【0028】

ホール輸送性有機薄膜層311、発光性有機薄膜層312及び電子輸送性有機薄膜層313の各々は仮支持体を使用する剥離転写法により形成する。具体的には、まず仮支持体の片面にホール輸送性有機薄膜層311を塗布した第一の転写材料を使用

して、透明導電層302の上面にホール輸送性有機薄膜層311を剥離転写法により形成し、次いで仮支持体の片面に発光性有機薄膜層312（青、緑及び赤の発光画素312a, 312b, 312cを有するようにパターンニングする。）を塗布した第二の転写材料を使用して、ホール輸送性有機薄膜層311の上面に発光性有機薄膜層312を剥離転写法により形成し、最後に仮支持体の片面に電子輸送性有機薄膜層313を塗布した第三の転写材料を使用して、発光性有機薄膜層312の上面に電子輸送性有機薄膜層313を剥離転写法により形成する。

【 0 0 2 9 】

(b) 第二の例

図5(b)は本発明の方法により得られる有機薄膜層のさらに別の例を示す。この有機薄膜層320の層構成自体は第一の例と同じであるが、製造方法が異なる。層構成に関しては、有機薄膜層320は、基板支持体301上の透明導電層302の上面に、ホール輸送性有機薄膜層321、発光性有機薄膜層322及び電子輸送性有機薄膜層323が形成されたものである。この発光性有機薄膜層322は、青、緑及び赤の発光画素322a, 322b, 322cからなる。

【 0 0 3 0 】

この例では、発光性有機薄膜層322だけ剥離転写法により形成し、ホール輸送性有機薄膜層321及び電子輸送性有機薄膜層323は湿式塗布法により形成する。具体的には、まず湿式塗布法によりホール輸送性有機薄膜層321を透明導電層302の上面に形成し、次いで仮支持体の片面に発光性有機薄膜層322（青、緑及び赤の発光画素322a, 322b, 322cを有するようにパターンニングする。）を塗布した転写材料を使用して、ホール輸送性有機薄膜層321の上面に発光性有機薄膜層322を剥離転写法により形成し、最後に湿式塗布法により電子輸送性有機薄膜層323を発光性有機薄膜層322の上面に形成する。

【 0 0 3 1 】

(c) 第三の例

図5(c)は本発明の方法により得られる有機薄膜層のさらに別の例を示す。この有機薄膜層330の層構成自体は第一の例と同じであるが、製造方法が異なる。層構成に関しては、有機薄膜層330は、基板支持体301上の透明導電層302の上面

に、ホール輸送性有機薄膜層331、発光性有機薄膜層332及び電子輸送性有機薄膜層333が形成されたものである。この発光性有機薄膜層332は、青、緑及び赤の発光画素332a, 332b, 332cからなる。

#### 【0032】

ホール輸送性有機薄膜層331及び発光性有機薄膜層332は仮支持体を使用する剥離転写法によりまとめて形成し、電子輸送性有機薄膜層333は湿式塗布法により形成する。具体的には、まず仮支持体の片面に湿式塗布法によりホール輸送性有機薄膜層331を形成した後で、その上に青、緑及び赤の発光画素332a, 332b, 332cを有するようにパターンニングした発光性有機薄膜層332を形成することにより転写材料を作製し、この転写材料を用いて剥離転写法によりホール輸送性有機薄膜層331及び発光性有機薄膜層332からなる有機薄膜層335を透明導電層302の上面に形成し、次いで電子輸送性有機薄膜層333を発光性有機薄膜層332の上面に湿式塗布法により形成する。

#### 【0033】

##### (d) 第四の例

図5(d)は本発明の方法により得られる有機薄膜層のさらに別の例を示す。この有機薄膜層340の層構成自体は第一の例と同じであるが、製造方法が異なる。層構成に関しては、有機薄膜層340は、基板支持体301上の透明導電層302の上面に、ホール輸送性有機薄膜層341、発光性有機薄膜層342及び電子輸送性有機薄膜層343が形成されたものである。この発光性有機薄膜層342は、青、緑及び赤の発光画素342a, 342b, 342cからなる。

#### 【0034】

ホール輸送性有機薄膜層341は湿式塗布法により形成し、発光性有機薄膜層342及び電子輸送性有機薄膜層343は仮支持体を使用する剥離転写法によりまとめて形成する。すなわち、ホール輸送性有機薄膜層341を湿式塗布法により透明導電層302の上面に形成し、次いで仮支持体の片面に青、緑及び赤の発光画素342a, 342b, 342cを有するようにパターンニングした発光性有機薄膜層342を形成した後で、その上に電子輸送性有機薄膜層343を湿式塗布法により形成することにより転写材料を作製し、この転写材料を用いて剥離転写法によりホール輸送性有機薄膜

層341の上面に発光性有機薄膜層342及び電子輸送性有機薄膜層343からなる有機薄膜層345を形成する。

# 【0035】

## [4] 有機薄膜素子の構成

有機薄膜素子の全体構成は、基板支持体上に透明導電層／発光性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／ホール輸送性有機薄膜層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／ホール輸送性有機薄膜層／発光性有機薄膜層／背面電極、透明導電層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／電子注入層／背面電極、透明導電層／ホール注入層／ホール輸送性有機薄膜層／発光性有機薄膜層／電子輸送性有機薄膜層／電子注入層／背面電極等をこの順に積層した構成、これらを逆に積層した構成等であってよい。発光性有機薄膜層は燐光発光性化合物を含有し、通常、透明導電層から発光が取り出される。各層に用いる化合物の具体例については、例えば「月刊ディスプレイ」1998年10月号別冊の「有機ELディスプレイ」（テクノタイムズ社）等に記載されている。

# 【0036】

## (1) 基板

### (a) 基板支持体

基板支持体は、ジルコニア安定化イットリウム（YSZ）、ガラス等の無機材料、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステルやポリスチレン、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、アリルジグリコールカーボネート、ポリイミド、ポリシクロオレフィン、ノルボルネン樹脂、ポリ(クロロトリフルオロエチレン)、テフロン、ポリテトラフルオロエチレンーポリエチレン共重合体等の高分子材料等からなるものであってよい。基板支持体は単一材料で形成しても、2種以上の材料で形成してもよい。中でも、フレキシブルな有機薄膜素子を形成するためには高分子材料が好ましく、耐熱性、寸法安定性、耐溶剤性、電気絶縁性及び加工性に優れ、且つ低通気性及び低吸湿性であるポリエステル、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホンや、ポリ(クロロトリフルオロエチレン)、テフロン、ポリ

テトラフルオロエチレンーポリエチレン共重合体等のフッ素原子を含む高分子材料がより好ましい。

## 【0037】

基板支持体の形状、構造、大きさ等は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。形状は板状とするのが一般的である。構造は単層構造であっても積層構造であってもよい。基板支持体は単一の部材で形成しても、2以上の部材で形成してもよい。また、基板支持体は無色透明であっても有色透明であってもよいが、発光性有機薄膜層から発せられる光を散乱又は減衰させることがない点で無色透明であるのが好ましい。

## 【0038】

基板支持体の電極側の面、電極と反対側の面又はその両方に透湿防止層（ガスバリア層）を設けてもよい。透湿防止層を構成する材料としては窒化ケイ素、酸化ケイ素等の無機物を用いるのが好ましい。透湿防止層は高周波スパッタリング法等により成膜できる。また、基板支持体には必要に応じてハードコート層やアンダーコート層を設けてもよい。

## 【0039】

## (b) 透明導電層（透明電極）

透明導電層は有機化合物層にホール（正孔）を供給する陽極としての機能を有するが、陰極として機能させることもできる。以下、透明導電層を陽極とする場合について説明する。

## 【0040】

透明導電層の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。透明導電層を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料を用いる。具体例としては、アンチモンをドーブした酸化スズ（ATO）、フッ素をドーブした酸化スズ（FTO）、半導性金属酸化物（酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）、酸化亜鉛インジウム（IZO）等）、金属（金、銀、クロム、ニッケル等）、これら金属と導電性金属酸化物との混合物又は積層物、無機導電性物質（ヨウ

化銅、硫化銅等)、有機導電性材料(ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロール等)及びこれとITOとの積層物等が挙げられる。

【0041】

透明導電層は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD、プラズマCVD法等の化学的方法等によって基板支持体上に形成することができる。形成方法は透明導電層材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、透明導電層の材料としてITOを用いる場合には、直流又は高周波スパッタ法、真空蒸着法、イオンプレーティング法等を用いればよい。また透明導電層の材料として有機導電性材料を用いる場合には、湿式製膜法を用いてよい。

【0042】

透明導電層のパターニングはフォトリソグラフィ等による化学的エッチング、レーザ等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。またマスクを用いた真空蒸着やスパッタリング、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0043】

透明導電層の形成位置は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、基板支持体上に形成するのが好ましい。このとき透明導電層は基板支持体の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。

【0044】

透明導電層の厚さはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10nm~50 $\mu$ mであり、好ましくは50nm~20 $\mu$ mである。透明導電層の抵抗値は10<sup>3</sup> $\Omega$ /□以下とするのが好ましく、10<sup>2</sup> $\Omega$ /□以下とするのがより好ましい。透明導電層は無色透明であっても有色透明であってもよい。透明導電層側から発光を取り出すためには、その透過率は60%以上とするのが好ましく、70%以上とするのがより好ましい。透過率は分光光度計を用いた公知の方法に従って測定することができる。

【0045】

また、「透明導電膜の新展開」(沢田豊監修、シーエムシー刊、1999年)等に



詳細に記載されている電極も本発明に適用できる。特に耐熱性の低いプラスチック基板支持体を用いる場合は、透明導電層材料としてITO又はIZOを使用し、150℃以下の低温で製膜するのが好ましい。

## 【 0 0 4 6 】

## (2) 背面電極

背面電極は有機化合物層に電子を注入する陰極としての機能を有するが、陽極として機能させることもできる。以下、背面電極を陰極とする場合について説明する。

## 【 0 0 4 7 】

背面電極の形状、構造、大きさ等は特に制限されず、有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択することができる。背面電極を形成する材料としては、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、これらの混合物等を用いることができ、好ましくは仕事関数が4.5eV以下の材料を用いる。具体例としては、アルカリ金属（Li、Na、K、Cs等）、アルカリ土類金属（Mg、Ca等）、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム－カリウム合金、リチウム－アルミニウム合金、マグネシウム－銀合金、インジウム、希土類金属（イッテルビウム等）等が挙げられる。これらは単独で使用してもよいが、安定性と電子注入性とを両立させるためには2種以上を併用するのが好ましい。これら材料の中で、電子注入性の観点からはアルカリ金属及びアルカリ土類金属が好ましく、保存安定性の観点からはアルミニウムを主体とする材料が好ましい。ここでアルミニウムを主体とする材料とは、アルミニウム単独、アルミニウムと0.01～10質量%のアルカリ金属又はアルカリ土類金属との合金又は混合物（リチウム－アルミニウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金等）を指す。背面電極の材料としては、特開平2-15595号、特開平5-121172号等に詳述されているものも使用できる。

## 【 0 0 4 8 】

背面電極は印刷法、コーティング法等の湿式方法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等の物理的方法、CVD、プラズマCVD法等の化学的方法等によって形成することができる。形成方法は背面電極材料との適性を考慮して適宜選択すればよい。例えば、背面電極の材料として2種以上の金属等を用

いる場合には、その材料を同時又は順次にスパッタして形成できる。

【0049】

背面電極のパターニングはフォトリソグラフィー等による化学的エッチング、レーザ等を用いた物理的エッチング等により行うことができる。また、マスクを用いた真空蒸着やスパッタリング、リフトオフ法、印刷法等によりパターニングしてもよい。

【0050】

背面電極の形成位置は有機薄膜素子の用途及び目的に応じて適宜選択してよいが、有機化合物層上に形成するのが好ましい。このとき背面電極は有機化合物層の表面全体に形成しても一部のみに形成してもよい。また、背面電極と有機化合物層との間にアルカリ金属又はアルカリ土類金属のフッ化物等からなる誘電体層を0.1～5nmの厚さで設置してもよい。誘電体層は真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法等により形成することができる。

【0051】

背面電極の厚さはその材料に応じて適宜選択すればよいが、通常10nm～5 $\mu$ mであり、好ましくは50nm～1 $\mu$ mである。背面電極は透明であっても不透明であってもよい。透明背面電極は、上述した材料の層を1～10nmの厚さに薄く製膜し、更にITOやIZO等の透明導電性材料を積層して形成してよい。

【0052】

(3) 発光性有機薄膜層

発光性有機薄膜層は少なくとも一種の発光性化合物を含有する。発光性化合物は特に限定的ではなく、蛍光発光性化合物であっても燐光発光性化合物であってもよい。また蛍光発光性化合物及び燐光発光性化合物を同時に用いてもよい。本発明においては、発光輝度及び発光効率の点から燐光発光性化合物を用いることが好ましい。

【0053】

蛍光発光性化合物としては、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ベンゾチアゾール誘導体、スチリルベンゼン誘導体、ポリフェニル誘導体、ジフェニルブタジエン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ナフタル

イミド誘導体、クマリン誘導体、ペリレン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラリジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、キナクリドン誘導体、ピロロピリジン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、スチリルアミン誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、金属錯体（8-キノリノール誘導体の金属錯体、希土類錯体等）、高分子発光性化合物（ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等）等が使用できる。これらは単独で用いても二種以上を混合して用いてもよい。

## 【 0 0 5 4 】

燐光発光性化合物は、好ましくは三重項励起子から発光することができる化合物であり、オルトメタル化錯体及びポルフィリン錯体が好ましい。ポルフィリン錯体の中ではポルフィリン白金錯体が好ましい。燐光発光性化合物は単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

## 【 0 0 5 5 】

本発明でいうオルトメタル化錯体とは、山本明夫著「有機金属化学 基礎と応用」，150頁及び232頁，裳華房社（1982年）、H. Yersin著「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」，71～77頁及び135～146頁，Springer-Verlag社（1987年）等に記載されている化合物群の総称である。オルトメタル化錯体を形成する配位子は特に限定されないが、2-フェニルピリジン誘導体、7,8-ベンゾキノリン誘導体、2-(2-チエニル)ピリジン誘導体、2-(1-ナフチル)ピリジン誘導体又は2-フェニルキノリン誘導体であるのが好ましい。これら誘導体は置換基を有してもよい。また、これらのオルトメタル化錯体形成に必須の配位子以外に他の配位子を有していてもよい。オルトメタル化錯体を形成する中心金属としては、遷移金属であればいずれも使用可能であり、本発明ではロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。このようなオルトメタル化錯体を含む有機化合物層は、発光輝度及び発光効率に優れている。オルトメタル化錯体については、特願2000-254171号の段落番号0152～0180にもその具体例が記載されている。

## 【 0 0 5 6 】

本発明で用いるオルトメタル化錯体は、Inorg. Chem., 30, 1685, 1991、Inorg. Chem., 27, 3464, 1988、Inorg. Chem., 33, 545, 1994、Inorg. Chim. Acta, 181, 245, 1991、J. Organomet. Chem., 335, 293, 1987、J. Am. Chem. Soc., 107, 1431, 1985 等に記載の公知の手法で合成することができる。

## 【 0 0 5 7 】

発光性有機薄膜層中の発光性化合物の含有量は特に制限されないが、例えば0.1～70質量%であり、1～20質量%であるのが好ましい。発光性化合物の含有量が0.1質量%未満であるか、70質量%を超えると、その効果が十分に発揮されない場合がある。

## 【 0 0 5 8 】

発光性有機薄膜層は必要に応じてホスト化合物、ホール輸送材料、電子輸送材料、電氣的に不活性なポリマーバインダー等を含有してもよい。

## 【 0 0 5 9 】

ホスト化合物とはその励起状態から発光性化合物へエネルギー移動が起こり、その結果該発光性化合物を発光させる化合物である。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ポルフィリン化合物、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール等を配位子とする金属錯体、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレ

ン誘導体等が挙げられる。ホスト化合物は1種単独で使用しても2種以上を併用してもよい。

#### 【0060】

ホール輸送材料は陽極からホールを注入する機能、ホールを輸送する機能、及び陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば特に限定されず、低分子材料であっても高分子材料であってもよい。その具体例としては、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリーールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラズロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリーールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン化合物、ポルフィリン化合物、ポリシラン化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が挙げられる。これらは単独で使用しても2種以上を混合して使用してもよい。

#### 【0061】

電子輸送材料は陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、及び陽極から注入されたホールを障壁する機能のいずれかを有しているものであれば特に限定されず、例えばトリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、アントロン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド誘導体、フルオレニリデンメタン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタロフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾール等を配位子とする金属錯体、アニリン共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子、ポリチオフェン誘導体、ポリフェニレン誘導体、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリフルオレン誘導体等が使用可能で

ある。

【 0 0 6 2 】

ポリマーバインダーとしては、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリビニルブチラル、ポリビニルアセタール等が使用可能である。ポリマーバインダーを含有する発光性有機薄膜層は、湿式製膜法によって、容易に且つ大面積に塗布形成することができる。

【 0 0 6 3 】

発光性有機薄膜層の厚さは10～200nmとするのが好ましく、20～80nmとするのがより好ましい。厚さが200nmを超えると駆動電圧が上昇する場合があります、10nm未満であると有機薄膜素子が短絡する場合がある。

【 0 0 6 4 】

(4) ホール輸送性有機薄膜層

有機薄膜素子は、必要に応じて上述したホール輸送材料からなるホール輸送性有機薄膜層を有してよい。ホール輸送性有機薄膜層は上述のポリマーバインダーを含有してもよい。ホール輸送性有機薄膜層の厚さは10～200nmとするのが好ましく、20～80nmとするのがより好ましい。厚さが200nmを越えると駆動電圧が上昇する場合があります、10nm未満であると有機薄膜素子が短絡する場合がある。

【 0 0 6 5 】

(5) 電子輸送性有機薄膜層

有機薄膜素子は、必要に応じて上述した電子輸送材料からなる電子輸送性有機薄膜層を有してよい。電子輸送性有機薄膜層は上述のポリマーバインダーを含有してもよい。電子輸送性有機薄膜層の厚さは10～200nmとするのが好ましく、20～80nmとするのがより好ましい。厚さが200nmを越えると駆動電圧が上昇する場合があります、10nm未満であると有機薄膜素子が短絡する場合がある。

【 0 0 6 6 】

## (6) その他の層

有機薄膜素子は、特開平7-85974号、同7-192866号、同8-22891号、同10-27568号、同10-106746号等に記載の保護層を有していてもよい。保護層は有機薄膜素子の最上面に形成する。ここで最上面とは、基板支持体、透明導電層、有機化合物層及び背面電極をこの順に積層する場合には背面電極の外側表面を指し、基板支持体、背面電極、有機化合物層及び透明導電層をこの順に積層する場合には透明導電層の外側表面を指す。保護層の形状、大きさ、厚さ等は特に限定されない。保護層をなす材料は、水分や酸素等の有機薄膜素子を劣化させ得るものが素子内に侵入又は透過するのを抑制する機能を有しているものであれば特に限定されず、酸化ケイ素、二酸化ケイ素、酸化ゲルマニウム、二酸化ゲルマニウム等が使用できる。

## 【 0 0 6 7 】

保護層の形成方法は特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、分子センエピタキシ法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法、プラズマCVD法、レーザCVD法、熱CVD法、コーティング法等が適用できる。

## 【 0 0 6 8 】

また有機薄膜素子には水分や酸素の侵入を防止するための封止層を設けるのが好ましい。封止層を形成する材料としては、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとの共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリユリア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン又はジクロロジフルオロエチレンと他のコモノマーとの共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質、金属(In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等)、金属酸化物(MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等)、金属フッ化物(MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等)、液状フッ素化炭素(パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等)、該液状フッ素化炭素に水分や酸素の吸着剤を分散させたもの等が使用可能である。

## 【 0 0 6 9 】

本発明においては、外部からの水分や酸素を遮断する目的で、有機化合物層を封止板、封止容器等の封止部材により封止する。本発明では、封止部材を背面電極側のみに設置しても、発光積層体全体を封止部材で覆ってもよい。有機化合物層を封止でき外部の空気を遮断することができれば、封止部材の形状、大きさ、厚さ等は特に限定されない。封止部材に用いる材料としては、ガラス、ステンレス、金属（アルミ等）、プラスチック（ポリ（クロロトリフルオロエチレン）、ポリエステル、ポリカーボネート等）、セラミック等が使用できる。

## 【 0 0 7 0 】

封止部材を発光積層体に設置する際には、適宜封止剤（接着剤）を用いてよい。発光積層体全体を封止部材で覆う場合は、封止剤を用いずに封止部材同士を熱融着してもよい。封止剤としては紫外線硬化樹脂、熱硬化樹脂、二液型硬化樹脂等が使用可能である。

## 【 0 0 7 1 】

さらに本発明においては、封止容器と有機薄膜素子の間の空間に水分吸収剤又は不活性液体を挿入してもよい。水分吸収剤は特に限定されず、具体例としては酸化バリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、五酸化リン、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化銅、フッ化セシウム、フッ化ニオブ、臭化カルシウム、臭化バナジウム、モレキュラーシーブ、ゼオライト、酸化マグネシウム等が挙げられる。不活性液体としてはパラフィン類、流動パラフィン類、フッ素系溶剤（パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロエーテル等）、塩素系溶剤、シリコンオイル類等が使用可能である。

## 【 0 0 7 2 】

## 【実施例】

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

## 【 0 0 7 3 】

実施例 1



仮支持体上におけるパターンニングした発光性有機薄膜層の形成

ポリビニルカルバゾール ( $M_w = 63000$ 、アルドリッチ社製) と、オルトメタル化錯体としてのトリス (2-フェニルピリジン) イリジウム錯体とを 40 : 1 の重量比でジクロロエタンに溶解し、得られた塗布液を厚さ  $5 \mu m$  の PET フィルム (帝人 (株) 製) からなる仮支持体にマイクログラビアコートを用いて塗布し、乾燥させることにより、縦  $300 \mu m$  及び横  $600 \mu m$  のパターン状で、厚さが  $40 \text{ nm}$  の青色発光層 (発光画素) を得た。

## 【 0 0 7 4 】

ポリビニルカルバゾール ( $M_w = 63000$ 、アルドリッチ社製) と、オルトメタル化錯体としてのトリス (2-フェニルピリジン) イリジウム錯体とを 40 : 1 の重量比でジクロロエタンに溶解した。得られた塗布液を、上記仮支持体の表面で青色発光画素間の空隙の半分の部分に、マイクログラビアコートを用いて塗布し、乾燥させることにより、縦  $300 \mu m$  及び横  $600 \mu m$  のパターン状で、厚さが  $40 \text{ nm}$  の緑色発光層 (発光画素) を得た。

## 【 0 0 7 5 】

ポリビニルカルバゾール ( $M_w = 63000$ 、アルドリッチ社製) と、オルトメタル化錯体としてのトリス (2-フェニルピリジン) イリジウム錯体とを 40 : 1 の重量比でジクロロエタンに溶解した。得られた塗布液を、上記仮支持体表面の空隙部分にマイクログラビアコートを用いて塗布し、乾燥させることにより、縦  $300 \mu m$  及び横  $600 \mu m$  のパターン状で、厚さが  $40 \text{ nm}$  の赤色発光層 (発光画素) を得た。

## 【 0 0 7 6 】

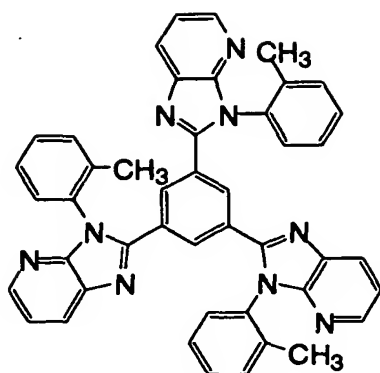
このようにして、仮支持体に青、緑及び赤の発光画素をパターン状に形成した第一の転写材料を作製した。

## 【 0 0 7 7 】

実施例 2仮支持体におけるホール輸送性有機薄膜層の作製

ポリビニルブチラール ( $M_w = 50000$ 、アルドリッチ社製) と下記一般式：

## 【化 1】



により表される化合物とを10：20の重量比で、1-ブタノールに溶解して得た塗布液を、厚さ5  $\mu$ mのPETフィルム（帝人（株）製）からなる仮支持体にエクストルージョン型塗布機を用いて塗布し、80℃で2時間真空乾燥させることにより、厚さ60 nmのキャリア輸送層（電子輸送性有機薄膜層）を仮支持体に形成した第二の転写材料を作製した。

【0078】

実施例 3有機EL素子の作製

基板支持体として厚さ0.5mmで2.5cm角のガラス板を用い、この基板支持体を真空チャンバー内に導入し、SnO<sub>2</sub>含有率が10質量%のITOターゲット（インジウム：錫＝95：5（モル比））を用いて、DCマグネトロンスパッタ（条件：基板支持体の温度250℃、酸素圧 $1 \times 10^{-3}$  Pa）により、ITO薄膜（厚さ0.2  $\mu$ m）からなる透明電極を形成した。ITO薄膜の表面抵抗は10  $\Omega$ /□であった。

【0079】

透明電極を形成したガラス板を洗浄容器に入れ、イソプロピルアルコール（IPA）により洗浄した後、これに酸素プラズマ処理を行った。処理した透明電極の表面に、ポリ（エチレンジオキシチオフェン）・ポリスチレンスルホン酸の水性分散液（BAYER社製、Baytron P：固形分1.3質量%）をスピコートした後、150℃で2時間真空乾燥し、厚さ100 nmのキャリア輸送層（ホール輸送性有機薄膜層）を形成した。

## 【 0 0 8 0 】

得られたホール輸送性有機薄膜層上に、実施例 1 で作製した第一の転写材料を用い、図 3 に示す装置により第一の転写材料を透明導電層の表面に接触させ、真空吸引により第一の転写材料と基板とを密着させた。第一の転写材料側から赤外線ランプで加熱し、仮支持体を引き剥がすことにより、青、緑及び赤の発光画素を有するパターニングされた発光性有機薄膜層を得た。

## 【 0 0 8 1 】

この発光性有機薄膜層上に、実施例 2 で得られた第二の転写材料を図 3 に示す装置により発光性有機薄膜層の表面に接触させ、真空吸引により第二の転写材料と発光性有機薄膜層とを密着させた後、第二の転写材料側から赤外線ランプで加熱し、仮支持体を引き剥がすことにより、発光性有機薄膜層上に電子輸送性有機薄膜層を積層した。

## 【 0 0 8 2 】

この電子輸送性有機薄膜層上にパターニングした蒸着用のマスク（発光面積が  $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$  となるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀 = 10 : 1（モル比）を  $0.25\text{ }\mu\text{ m}$  蒸着し、銀を  $0.3\text{ }\mu\text{ m}$  蒸着して背面電極を形成した。透明電極（陽極として機能する）及び背面電極よりそれぞれアルミニウムのリード線を結線し、積層構造体を形成した。

## 【 0 0 8 3 】

得られた積層構造体を、窒素ガスで置換したグローブボックス内に入れ、ガラス製の封止容器で紫外線硬化型接着剤（長瀬チバ（株）製、XNR5493）を用いて封止した。このようにして有機 EL 素子を作製した。

## 【 0 0 8 4 】

得られた有機 EL 素子を以下の方法により評価した。まずソースメジャーユニット 2400 型（東洋テクニカ（株）製）を用いて、直流電圧を有機 EL 素子に印加し、発光させた。  $200\text{ Cd/m}^2$  時の発光効率は 1.2% であり、  $2000\text{ Cd/m}^2$  時の発光効率は 3.1% であった。

## 【 0 0 8 5 】

## 【発明の効果】

上記の通り、本発明により有機薄膜素子を構成する有機薄膜層を仮支持体に湿式法により塗布し、その有機薄膜層を基板に転写することにより、発光効率、発光量の均一性及び耐久性に優れた有機EL素子等の有機薄膜素子を低コストで製造できる。特に青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層を仮支持体に形成してなる転写材料を使用するので、フルカラーの有機EL素子でも精度良く簡単に製造することができる。また有機薄膜層を仮支持体に一旦湿式塗布してなる転写材料を採用しているので、有機薄膜層を非常に薄膜化できるという利点もある。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の一実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施する装置を示し、(a)は概略断面図であり、(b)はマスク枠及び透明導電層を示す平面図である。

【図2】 図1に示す方法において、基板と転写材料との間の閉空間を減圧した状態を示す概略断面図である。

【図3】 本発明の別の実施例による有機薄膜素子の製造方法を実施する装置を示す概略断面図である。

【図4】 本発明の方法により得られる有機薄膜素子の一例を示し、(a)は概略断面図であり、(b)は平面図である。

【図5】 本発明の方法により得られる有機薄膜素子の別の例を示す概略断面図である。

#### 【符号の説明】

101, 301・・・基板支持体

102, 302・・・透明導電層

103・・・マスク枠

104・・・減圧孔

105, 106・・・閉空間

110・・・転写材料

111・・・仮支持体

112, 310, 320, 330, 340・・・有機薄膜層

112a . . . 発光単位領域

113, 116 . . . 転写材料巻回用ロール

114 . . . 仮支持体巻回用ロール

115 . . . パイプ

120 . . . 遮蔽板

121, 312a, 322a, 332a, 342a . . . 青色の発光性有機薄膜層（発光画素）

122, 312b, 322b, 332b, 342b . . . 緑色の発光性有機薄膜層（発光画素）

123, 312c, 322c, 332c, 342c . . . 赤色の発光性有機薄膜層（発光画素）

311, 321, 331, 341 . . . ホール輸送性有機薄膜層

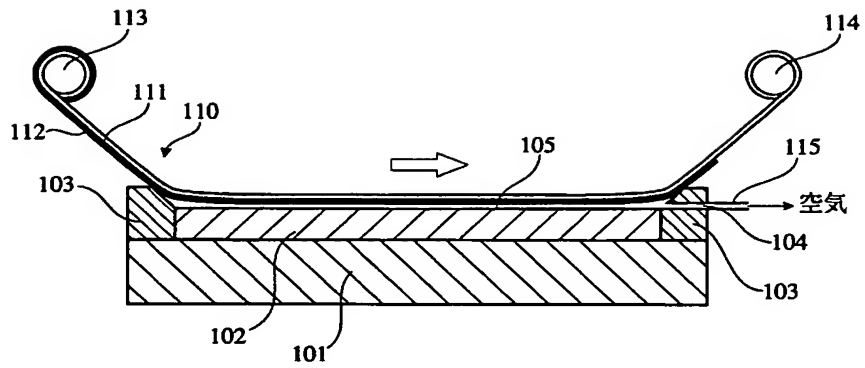
312, 322, 332, 342 . . . 発光性有機薄膜層

313, 323, 333, 343 . . . 電子輸送性有機薄膜層

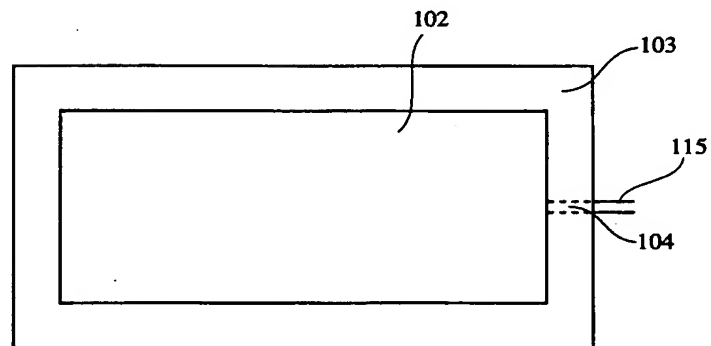
【書類名】 図面

【図 1】

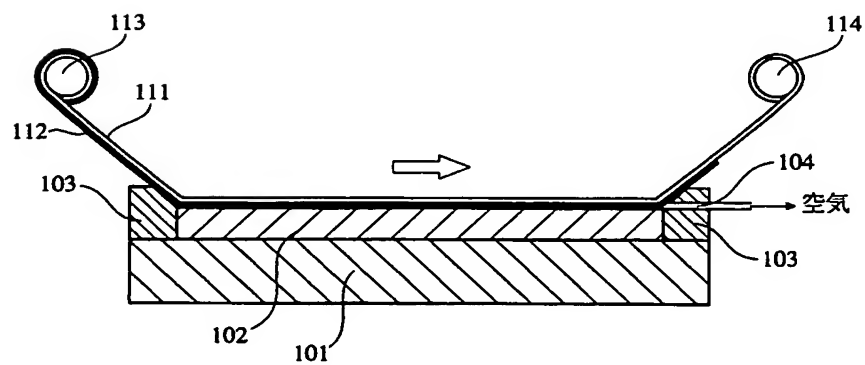
(a)



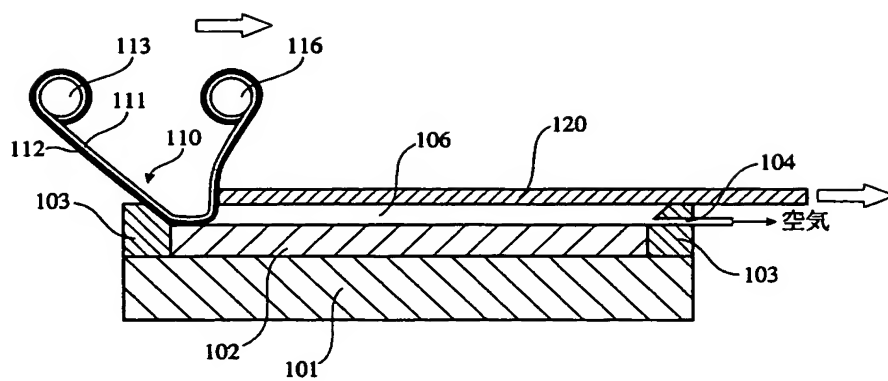
(b)



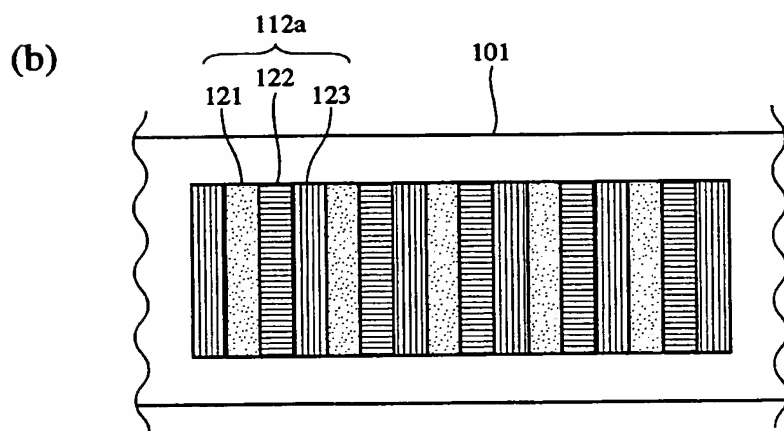
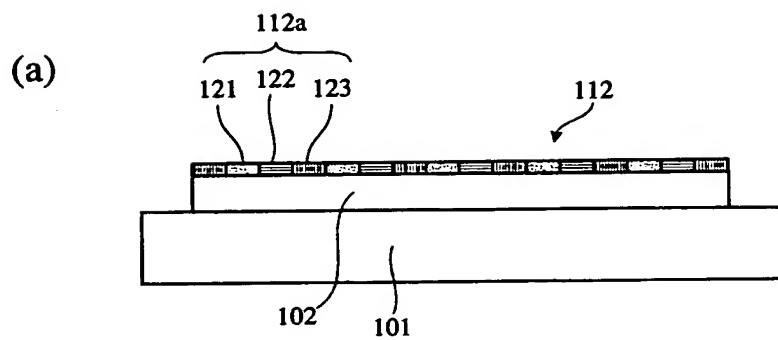
【図 2】



【図 3】

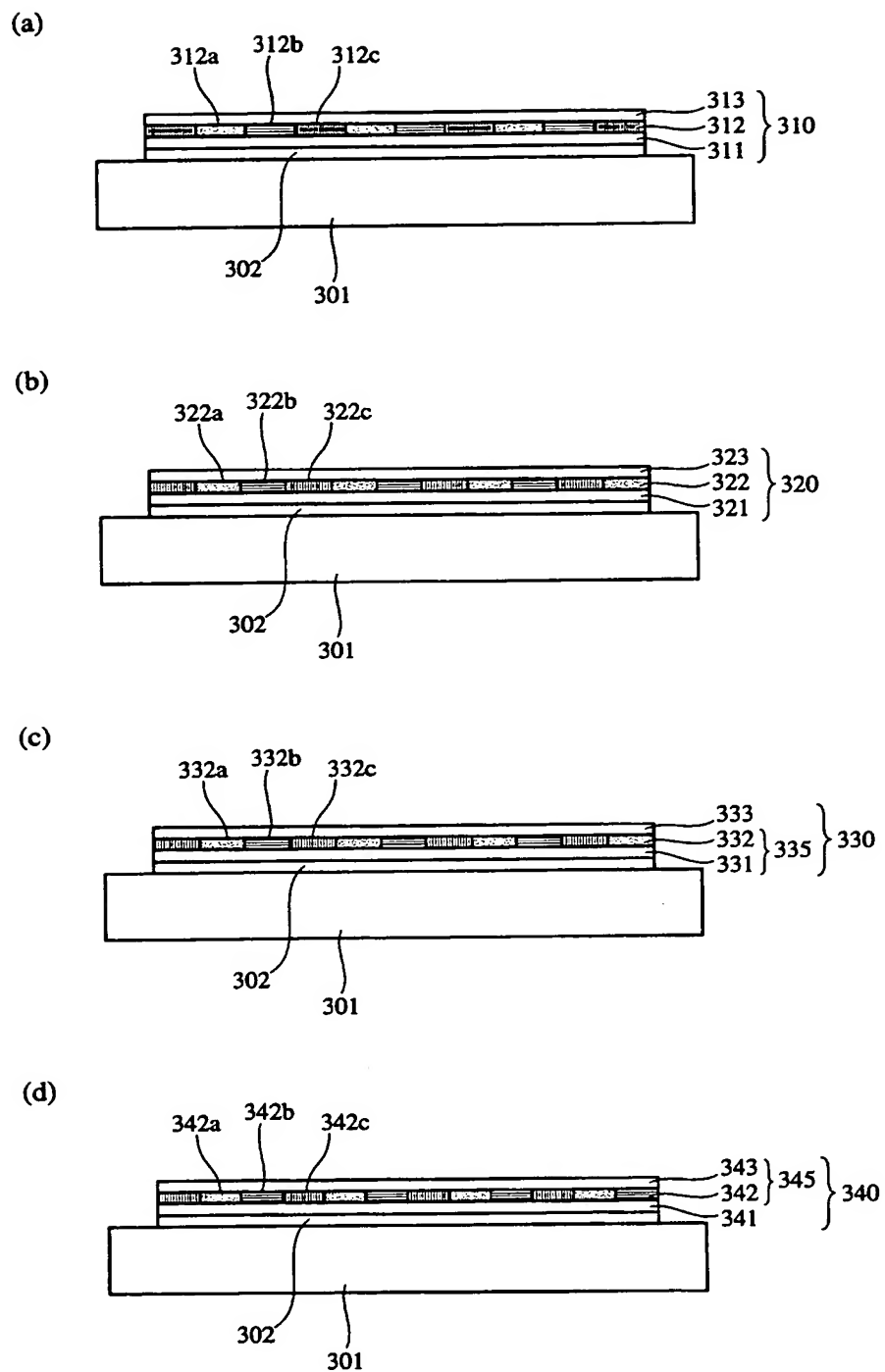


【 図 4 】





【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 生産性の高い湿式有機薄膜形成法による高分子型有機EL素子の転写材料、及びそれを用いた有機薄膜素子の製造方法を提供する。

【解決手段】 仮支持体111上に湿式法により青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層112を設けてなる転写材料110を基板支持体101上の透明導電層102の被成膜面に対面させ、転写材料110と被成膜面とに挟まれた空間を減圧することにより両者を密着させ、加熱した後仮支持体111を引き剥がし、青、緑及び赤の3色の発光画素がパターンニングされた有機薄膜層112を転写する。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号                   〔000005201〕

1. 変更年月日	1990年 8月14日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県南足柄市中沼210番地
氏 名	富士写真フイルム株式会社